

**BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**

REC'D 19 MAR 2004

WIPO

PCT

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung  
einer Patentanmeldung**

**Aktenzeichen:** 103 13 701.7

**Anmeldetag:** 27. März 2003

**Anmelder/Inhaber:** Clariant GmbH, 65929 Frankfurt/DE

**Bezeichnung:** Heterocyclische Farbmittel auf Basis von Benzodipyrrolen

**IPC:** C 09 B, C 08 J, C 09 D

**Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.**

München, den 26. Januar 2004  
**Deutsches Patent- und Markenamt**  
**Der Präsident**  
 Im Auftrag

Hintermeier

**PRIORITY  
DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN

**Beschreibung****5 Heterocyclische Farbmittel auf Basis von Benzodipyrrolen**

Die vorliegende Erfindung betrifft neue organische Pigmente und Farbstoffe.

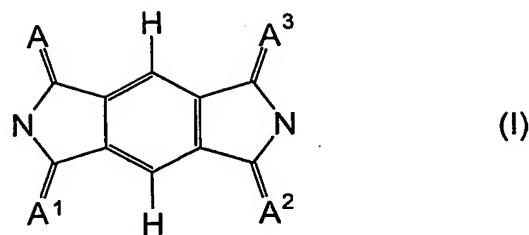
Auf dem Gebiet der Farbmittel besteht eine ständige Marktnachfrage nach neuen  
10 Farbnuancen, die hohe Migrations- und Lichteichtheiten, gute Wärmestabilitäten und  
eine hohe Färbekraft, sowie im Falle von Pigmenten zusätzlich hohe  
Lösungsmitteleichtheiten aufweisen.

In Angew. Chem. 1987, 99(10), Seiten 1068-1070, werden salzartige Verbindungen  
15 beschrieben, die das Dianion des 2,2',2'',2'''-Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-  
1,3,5,7(2H,6H)-tetracyclidentetrakis-propandinitrils enthalten. Diese Verbindungen und  
ihre Edukte werden in einer aufwändigen Synthesefolge erhalten. Für eine  
Anwendung als Farbmittel eignen sich diese Verbindungen aufgrund ihrer geringen  
Echtheiten nicht.

20 Es bestand die Aufgabe, neue Farbmittel zum Einfärben oder Pigmentieren von  
organischen oder anorganischen, hoch- oder niedermolekularen, insbesondere  
hochmolekularen organischen Materialien zu finden, die von einfach zugänglichen  
Zwischenprodukten ausgehen.

25 Es wurde gefunden, dass diese Aufgabe überraschenderweise durch Verbindungen  
der Formel (I) gelöst wird.

Ein Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind somit Verbindungen der  
30 allgemeinen Formel (I)



worin A für den zweiwertigen Rest einer cyclischen Verbindung der allgemeinen Formel (II)



5

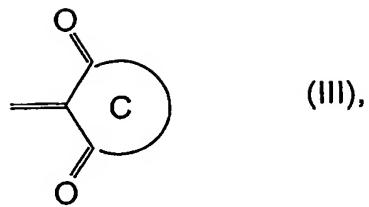
wobei B eine alicyclische oder heterocyclische Gruppe bedeutet, und A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup> und A<sup>3</sup> gleich oder verschieden sind und die Bedeutung von A haben oder =NR bedeuten, wobei R Wasserstoff, unsubstituiertes oder durch 1, 2, 3 oder 4 Reste Halogen, R<sup>0</sup>, OR<sup>0</sup>, SR<sup>0</sup>, NH<sub>2</sub>, NHR<sup>0</sup>, NR<sup>0</sup><sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, COOH, COOR<sup>0</sup>, CONH<sub>2</sub>, CONHR<sup>0</sup>, CONR<sup>0</sup><sub>2</sub>, CN, SO<sub>3</sub>H, SO<sub>2</sub>(OR<sup>0</sup>), SO<sub>2</sub>R<sup>0</sup>, oder durch einen 5- bis 7-gliedrigen heteroaromatischen Rest mit 1, 2 oder 3 Heteroatomen aus der Gruppe N, O und S substituiertes Phenyl; einen 5- bis 7-gliedrigen heteroaromatischen Rest mit 1, 2 oder 3 Heteroatomen aus der Gruppe N, O und S; NH<sub>2</sub>, NHR<sup>0</sup>, NR<sup>0</sup><sub>2</sub>, NHCONH<sub>2</sub> oder NHCONHR<sup>0</sup> bedeutet, wobei R<sup>0</sup> für C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl oder C<sub>6</sub>-C<sub>24</sub>-Aryl steht.

Bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), worin einer der Reste A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup> und A<sup>3</sup>, besonders bevorzugt A<sup>2</sup> oder A<sup>3</sup>, die Bedeutung von A hat.

Bevorzugt sind weiterhin Verbindungen der Formel (I), worin zwei der Reste A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup> und A<sup>3</sup>, besonders bevorzugt A<sup>1</sup> und A<sup>2</sup>, die Bedeutung von A haben.

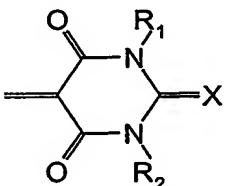
Bevorzugt sind weiterhin Verbindungen der Formel (I), worin A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup> und A<sup>3</sup> die Bedeutung von A haben.

Besonders bevorzugt sind Verbindungen der allgemeinen Formel (I), worin A für den zweiwertigen Rest einer cyclischen Verbindung der allgemeinen Formel (III) steht

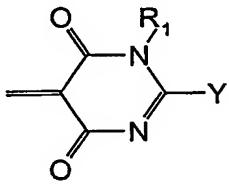


wobei C eine alicyclische oder heterocyclische Gruppe bedeutet.

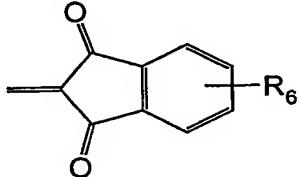
5 Ganz besonders bevorzugt sind Verbindungen der allgemeinen Formel (I),  
worin A einen zweiwertigen Rest der Formeln (a) bis (g) bedeutet,



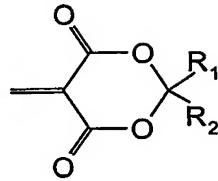
(a)



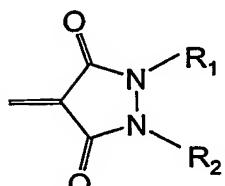
(b)



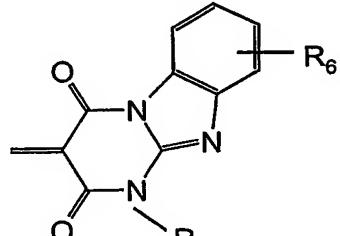
(c)



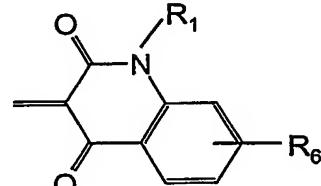
(d)



(e)



(f)



(g)

wobei R<sub>1</sub> und R<sub>2</sub> unabhängig voneinander für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>25</sub>-Alkyl, C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6</sub>-C<sub>24</sub>-Aryl, C<sub>1</sub>-C<sub>25</sub>-Alkyl-(C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-aryl), einen 5- bis 7-gliedrigen heteroaromatischen Rest mit 1, 2 oder 3 Heteroatomen aus der Gruppe N, O und S,

15 -(CH<sub>2</sub>)<sub>n</sub>-COR<sub>3</sub> oder -(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-OR<sub>4</sub>, stehen,  
worin R<sub>3</sub> für Hydroxy, Amino oder für unsubstituiertes oder ein- oder mehrfach, z.B.  
1-, 2-, 3- oder 4-fach, mit Hydroxy oder Amino substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>25</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>25</sub>-Alkylamino, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>25</sub>-alkyl)-amino, C<sub>6</sub>-C<sub>24</sub>-Arylamino, Di-(C<sub>6</sub>-C<sub>24</sub>-Aryl)-amino,  
C<sub>1</sub>-C<sub>25</sub>-Alkyl-(C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-aryl)-amino oder C<sub>2</sub>-C<sub>24</sub>-Alkenyloxy steht;  
20 R<sub>4</sub> für Wasserstoff oder -CO-(C<sub>1</sub>-C<sub>25</sub>-Alkyl) steht, und

n und m unabhängig voneinander für eine ganze Zahl von 0 bis 6, bevorzugt 1 bis 4 stehen,  
 und worin in R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>3</sub> und R<sub>4</sub> eine C-C- Einheit auch durch eine Ethereinheit C-O-C ersetzt sein kann;

5 X für =O, =S oder =NR<sub>5</sub> steht, worin R<sub>5</sub> die gleiche Bedeutung wie R<sub>1</sub> oder R<sub>2</sub> hat;  
 Y für Wasserstoff, R<sub>2</sub>, OR<sub>2</sub>, SR<sub>2</sub>, NHCN oder NR<sub>2</sub>R<sub>5</sub> steht;  
 und R<sub>6</sub> Wasserstoff, Halogen, CN, R<sub>2</sub>, OR<sub>2</sub>, SR<sub>2</sub>, NR<sub>2</sub>R<sub>5</sub>, NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>(OR<sub>2</sub>), SO<sub>2</sub>R<sub>2</sub>,  
 SO<sub>2</sub>NR<sub>2</sub>R<sub>5</sub> oder PO<sub>2</sub>(OR<sub>2</sub>) bedeutet.

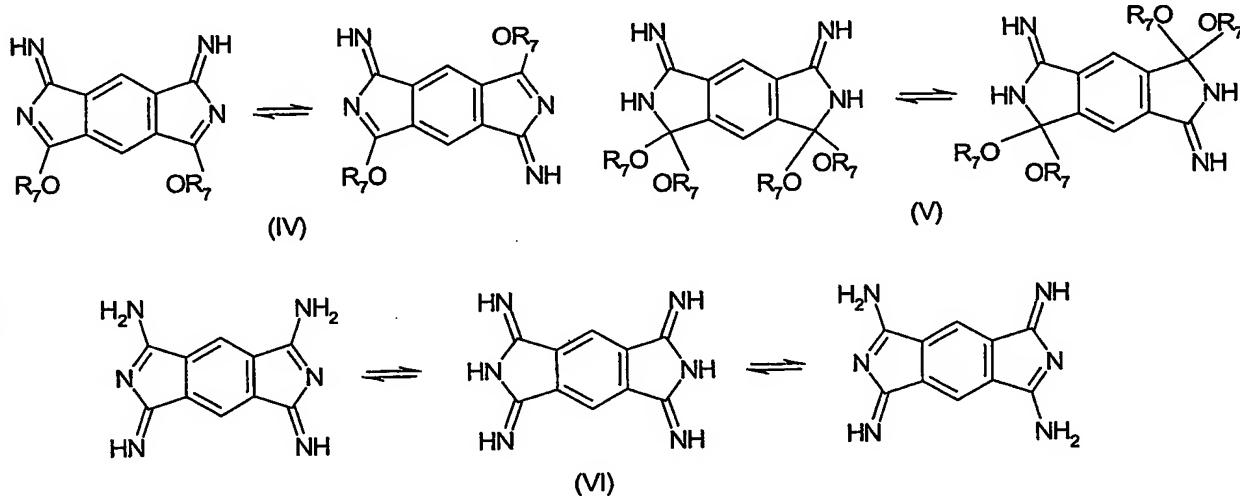
10 R<sub>1</sub> und R<sub>2</sub> sind besonders bevorzugt Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl, C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl,  
 C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aryl, Benzyl, Pyridyl, Pyrryl, Thienyl, Imidazolyl, Oxazolyl, Thiazolyl,  
 Pyrimidyl, Hydroxycarbonyl-C<sub>0</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkoxy carbonyl-C<sub>0</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl,  
 Aminocarbonyl-C<sub>0</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkylaminocarbonyl-C<sub>0</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-  
 Arylaminocarbonyl-C<sub>0</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl, Di(C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-alkyl)-aminocarbonyl-C<sub>0</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-  
 15 Alkyl-C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-arylaminocarbonyl-C<sub>0</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl und Di(C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-aryl)-aminocarbonyl-C<sub>0</sub>-  
 C<sub>6</sub>-alkyl.

20 R<sub>3</sub> ist besonders bevorzugt Hydroxy, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkylamino, Di(C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-  
 alkyl)-amino, Benzylamino, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Arylamino, Di(C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-aryl)-amino oder (C<sub>2</sub>-C<sub>18</sub>)-  
 Alkenyloxy.

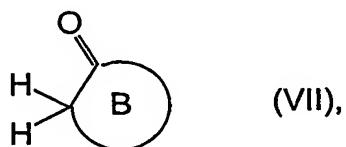
R<sub>6</sub> ist besonders bevorzugt Wasserstoff, Cl, Br, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl, C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl,  
 Benzyl, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aryl, Pyridyl, Pyrryl, Thienyl, Imidazolyl, Oxazolyl, Thiazolyl,  
 Pyrimidyl, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkoxy, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aryloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkylthio, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Arylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-  
 25 Alkylamino, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Arylamino, Di(C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-alkyl)-amino, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl-C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-arylamino,  
 Di(C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-aryl)-amino, SO<sub>3</sub>H, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkoxy sulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkylsulfonyl und Di(C<sub>1</sub>-  
 C<sub>18</sub>-alkyl)-aminosulfonyl.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ein Verfahren zur  
 30 Herstellung von Verbindungen der allgemeinen Formel (I) durch Umsetzung von  
 1,2,4,5-Tetracyanobenzol mit mindestens 2 Äquivalenten Ammoniak und/oder  
 Alkoholaten MOR<sub>7</sub>, worin M Natrium oder Kalium bedeutet, R<sub>7</sub> für C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl oder  
 -(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-OH steht, und m eine ganze Zahl von 0 bis 6 bedeutet, und eine C-C-  
 Einheit auch durch eine Ethereinheit C-O-C ersetzt sein kann, wie z.B.

Natriummethylat, Natriumethylat, Natriumamylat, Kaliummethyletat oder Kalium-tert.-butyletat,  
zu tetra-, tri-, di- oder monoiminosubstituierten Benzodipyrrolen, die 0 bis 5  
Alkoxy substituenten tragen können, beispielhaft repräsentiert durch Verbindungen  
5 der Formeln (IV), (V) oder (VI)



10 in einem Lösemittel oder Lösemittelgemisch unter basischen bis neutralen Bedingungen bei einer Temperatur von -20 bis 120°C, bevorzugt 0 bis 100°C, besonders bevorzugt 20 bis 80°C,  
die anschließend nach Zwischenisolierung oder ohne zwischenisoliert zu werden in einem Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch unter neutralen bis sauren Bedingungen, vorzugsweise in Gegenwart einer organischen Säure, wie z.B. Ameisensäure, Essigsäure und Propionsäure, oder einer anorganischen Säure, wie z.B. Schwefelsäure, Salzsäure und Phosphorsäure, und zweckmäßigerweise bei einer Temperatur von 10 bis 250°C, insbesondere 20 bis 200°C, besonders bevorzugt 30 bis 150°C, mit mindestens 1 Äquivalent einer cyclischen Verbindung  
20 der Formel (VII),



und ggf. höchstens 3 Äquivalenten H<sub>2</sub>NR umgesetzt werden, wobei R die vorstehende Bedeutung hat.

Zweckmäßigerweise erfolgt die erfindungsgemäße Umsetzung in Gegenwart eines Lösemittels wie Methanol, Ethanol, Glykolen, Dichlormethan, Chloroform,

5 Dimethylformamid, N-Methyl-pyrrolidon, Toluol, Mono-, Di- oder Trichlorbenzol oder einer Mischung davon.

Erfindungsgemäße Verbindungen der allgemeinen Formel (I) werden zum Einfärben oder Pigmentieren von organischen oder anorganischen, hoch- oder

10 niedermolekularen, insbesondere hochmolekularen organischen Materialien verwendet.

Je nach Art ihrer Substituenten und des zu färbenden hochmolekularen organischen Materials können die erfindungsgemäßen Verbindungen als polymerlösliche

15 Farbstoffe oder als Pigmente verwendet werden. Im letzteren Fall ist es vorteilhaft, die bei der Synthese anfallenden Produkte (Rohpigmente) durch Nachbehandlung in organischen Lösungsmitteln und bei erhöhten Temperaturen, beispielsweise bei 60 bis 200°C, insbesondere bei 70 bis 150°C, vorzugsweise bei 75 bis 100°C, in eine feindisperse Form mit oft weiter verbesserten Pigmenteigenschaften zu überführen.

20 Die Nachbehandlung wird vorzugsweise mit einer Mahl- oder Knetoperation kombiniert.

Die erfindungsgemäßen Farbmittel eignen sich ausgezeichnet zum Färben von hochmolekularen Materialien, die organischer oder anorganischer Natur sein

25 können, und Kunststoffe und/oder Naturstoffe bedeuten. Es kann sich zum Beispiel um Naturharze, trocknende Öle, Kautschuk oder Casein handeln. Es kann sich aber auch um abgewandelte Naturstoffe handeln, wie beispielsweise Chlorkautschuk, ölmodifizierte Alkydharze, Viskose, Cellulosederivate, wie Celluloseester oder Celluloseether, und insbesondere um vollsynthetische organische Polymere

30 (Kunststoffe), die durch Polymerisation, Polykondensation oder Polyaddition erhalten werden können. Aus der Klasse der durch Polymerisation hergestellten Kunststoffe seien besonders folgende genannt: Polyolefine, wie zum Beispiel Polyethylen, Polypropylen, Polyisobutylén, und substituierte Polyolefine, wie beispielsweise Polystyrol, Polyvinylchlorid, Polyvinylidenchlorid, Polyvinylacetale, Polyacrylnitril,

Polyacrylsäure, Polymethacrylsäure, Polyacrylsäure- und Polymethacrylsäureester oder Polybutadien, sowie Copolymerisate davon.

Aus der Klasse der durch Polyaddition und Polykondensation hergestellten Kunststoffe seien genannt: Polyester, Polyamide, Polyimide, Polycarbonate,

- 5 Polyurethane, Polyether, Polyacetale, sowie die Kondensationsprodukte von Formaldehyd mit Phenolen (Phenoplaste) und die Kondensationsprodukte von Formaldehyd mit Harnstoff, Thioharnstoff und Melamin (Aminoplaste). Weiterhin kann es sich auch um Silikone oder Silikonharze handeln.

- 10 Solche hochmolekularen Materialien können einzeln oder in Gemischen als plastische Massen, Schmelzen oder in Form von Spinnlösungen vorliegen. Sie können auch in Form ihrer Monomeren oder im polymerisierten Zustand in gelöster Form als Filmbildner oder Bindemittel für Lacke oder Druckfarben vorliegen, wie Leinölfirnis, Nitrocellulose, Alkydharze, Melaminharze und Formaldehydharze oder
- 15 Acrylharze.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen eignen sich demzufolge als Farbmittel in Anstrichfarben auf öliger oder wässriger Grundlage, in Lacken verschiedener Art, Tarnfarben, zum Spinnfärbeln, zum Massefärbeln oder Pigmentieren von

- 20 Kunststoffen, in Druckfarben für das graphische Gewerbe, wie zum Beispiel im Papier-, Textil- oder Dekorationsdruck, und in der Papiermassefärbung, zur Herstellung von Tinten, Ink-Jet Tinten auf wässriger oder nichtwässriger Basis, Mikroemulsionstinten und Tinten, die nach dem Hot-melt Verfahren arbeiten.

- 25 Die erfindungsgemäßen Verbindungen sind auch geeignet als Farbmittel in elektrophotographischen Tonern und Entwicklern, wie z.B. Ein- oder Zweikomponentenpulvertonern (auch Ein- oder Zweikomponenten-Entwickler genannt), Magnettoner, Flüssigtoner, Latextoner, Polymerisationstoner sowie Spezialtoner.

- 30 Typische Tonerbindemittel sind Polymerisations-, Polyadditions- und Polykondensationsharze, wie Styrol-, Styrolacrylat-, Styrolbutadien-, Acrylat-, Polyester-, Phenol-Epoxidharze, Polysulfone, Polyurethane, einzeln oder in Kombination, sowie Polyethylen und Polypropylen, die noch weitere Inhaltsstoffe,

wie Ladungssteuermittel, Wachse oder Fließhilfsmittel, enthalten können oder im Nachhinein mit diesen Zusätzen modifiziert werden.

Des weiteren sind die erfindungsgemäßen Verbindungen geeignet als Farbmittel in

5 Pulver und Pulverlacken, insbesondere in triboelektrisch oder elektrokinetisch versprühbaren Pulverlacken, die zur Oberflächenbeschichtung von Gegenständen aus beispielsweise Metall, Holz, Kunststoff, Glas, Keramik, Beton, Textilmaterial, Papier oder Kautschuk zur Anwendung kommen.

10 Als Pulverlackharze werden typischerweise Epoxidharze, carboxyl- und hydroxylgruppenhaltige Polyesterharze, Polyurethan- und Acrylharze zusammen mit üblichen Härtern eingesetzt. Auch Kombinationen von Harzen finden Verwendung. So werden beispielsweise häufig Epoxidharze in Kombination mit carboxyl- und hydroxylgruppenhaltigen Polyesterharzen eingesetzt. Typische Härterkomponenten

15 (in Abhängigkeit vom Harzsystem) sind beispielsweise Säureanhydride, Imidazole sowie Dicyandiamid und deren Abkömmlinge, verkappte Isocyanate, Bisacylurethane, Phenol- und Melaminharze, Triglycidylisocyanurate, Oxazoline und Dicarbonsäuren.

20 Außerdem sind die erfindungsgemäßen Verbindungen als Farbmittel in Tinten, vorzugsweise Ink-Jet Tinten, wie z.B. auf wässriger oder nichtwässriger Basis, Mikroemulsionstinten sowie in solchen Tinten, die nach dem hot-melt-Verfahren arbeiten, geeignet.

25 Ink-Jet-Tinten enthalten im allgemeinen insgesamt 0,5 bis 15 Gew.-%, vorzugsweise 1,5 bis 8 Gew.-%, (trocken gerechnet) einer oder mehrerer der erfindungsgemäßen Verbindungen.

Mikroemulsionstinten basieren auf organischen Lösemitteln, Wasser und ggf. einer zusätzlichen hydrotropen Substanz (Grenzflächenvermittler). Mikroemulsionstinten enthalten 0,5 bis 15 Gew.-%, vorzugsweise 1,5 bis 8 Gew.-%, einer oder mehrerer

30 der erfindungsgemäßen Verbindungen, 5 bis 99 Gew.-% Wasser und 0,5 bis 94,5 Gew.-% organisches Lösungsmittel und/oder hydrotrope Verbindung.

"Solvent based" Ink-Jet-Tinten enthalten vorzugsweise 0,5 bis 15 Gew.-% einer oder mehrerer erfindungsgemäßer Verbindungen, 85 bis 99,5 Gew.-% organisches Lösungsmittel und/oder hydrotrope Verbindungen.

5 Hot-Melt-Tinten basieren meist auf Wachsen, Fettsäuren, Fettalkoholen oder Sulfonamiden, die bei Raumtemperatur fest sind und bei Erwärmung flüssig werden, wobei der bevorzugte Schmelzbereich zwischen ca. 60°C und ca. 140°C liegt. Hot-Melt Ink-Jet-Tinten bestehen z.B. im wesentlichen aus 20 bis 90 Gew.-% Wachs und 1 bis 10 Gew.-% einer oder mehrerer der erfindungsgemäßen Verbindungen.

10 Weiterhin können 0 bis 20 Gew.-% eines zusätzlichen Polymers (als "Farbstofflöser"), 0 bis 5 Gew.-% Dispergierhilfsmittel, 0 bis 20 Gew.-% Viskositätsveränderer, 0 bis 20 Gew.-% Plastifizierer, 0 bis 10 Gew.-% Klebrigkeitszusatz, 0 bis 10 Gew.-% Transparenzstabilisator (verhindert z.B. Kristallisation der Wachse) sowie 0 bis 2 Gew.-% Antioxidans enthalten sein.

15 Außerdem sind die erfindungsgemäßen Verbindungen auch geeignet als Farbmittel für Farbfilter, sowohl für die additive wie für die subtraktive Farberzeugung, sowie als Farbmittel für elektronische Tinten ("electronic inks" bzw. "e-inks") oder "electronic paper"("e-paper").

20 Des weiteren eignen sich die erfindungsgemäßen Verbindungen als Farbmittel in Kosmetik, zur Einfärbung von Saatgut und zur Einfärbung von Mineralölen, Schmierfetten und Wachsen.

25 Je nach Art der Substituenten der erfindungsgemäßen Verbindungen, zeichnen sich die erhaltenen Färbungen durch gute Hitze-, Licht- und Wetterechtheit, Chemikalienbeständigkeit und die sehr guten applikatorischen Eigenschaften, z.B. Kristallisierechtheit und Dispergierechtheit und insbesondere durch ihre Migrier-, Ausblüh-, Überlackier- und Lösungsmittelechtheit aus. Die als polymerlösliche

30 Farbstoffe eingesetzten Verbindungen weisen naturgemäß nur eine geringe oder eingeschränkte Lösungsmittelechtheit auf.

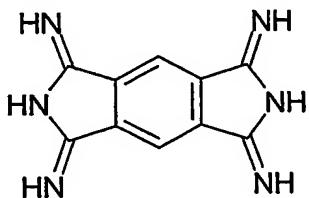
Einen weiteren Erfindungsgegenstand bildet eine Zusammensetzung, enthaltend ein organisches oder anorganisches, hochmolekulares oder niedermolekulares,

insbesondere hochmolekulares organisches Material, und mindestens eine erfindungsgemäße Verbindung in einer färberisch wirksamen Menge, in der Regel im Bereich von 0,005 bis 70 Gew.-%, insbesondere von 0,01 bis 10 Gew.-%, bezogen auf das organische oder anorganische Material.

5

### Beispiele

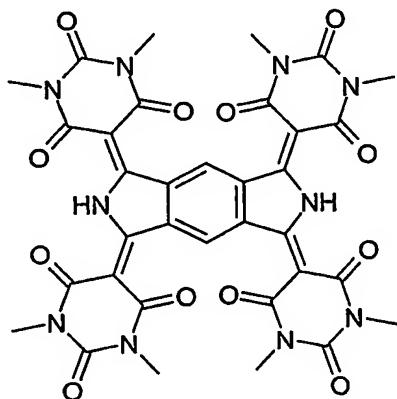
#### Herstellung von Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraimin



Ammoniakgas wird bei 55 - 60°C in eine Mischung von 20,0 g 1,2,4,5-Tetracyanobenzol in 500 mL Ethylenglycol eingeleitet, bis das Edukt vollständig umgesetzt ist (Kontrolle durch Dünnschichtchromatographie). Die Mischung wird auf 15 20°C abgekühlt und weitere 4h gerührt. Das Produkt wird abgesaugt, mit Ethylenglycol und Aceton gewaschen. Nach Trocknen bei 20°C im Vakuum werden 23,4 g (98 % d.Th.) eines beigen Pulvers der vorstehenden Formel erhalten.

MS (m/e): 213 [M+H]<sup>+</sup>

Beispiel 1: 5,5',5'',5'''-Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraylidentetrakis-1,3-dimethyl-2,4,6-trioxo-tetrahydropyrimidin



a) 5,3 g Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraimin und 23,4 g 1,3-Dimethylbarbitursäure werden in 225 ml Eisessig erst 30 min bei Raumtemperatur gerührt und danach 6 Stunden zum Sieden erhitzt. Die Suspension wird auf Raumtemperatur abgekühlt, filtriert, nacheinander mit Eisessig, Methanol und heißem Wasser (ca. 90°C) gewaschen und anschließend bei 60°C getrocknet.

5 Die Ausbeute beträgt 13,2 g (69 % d.Th.) eines orangefarbenen Pulvers der vorstehenden Formel.

Schmelzpunkt: > 300°C

MALDI (m/e): 768 [M-H]<sup>-</sup>

10 H-NMR (D<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>): 9.34 (s, 2H), 2.73 (s, 24H)

b) Eine Suspension von 11,3 g 1,2,4,5-Tetracyanobenzol und 3,0 g Natriummethylatlösung (30 % in Methanol) in 340 ml Methanol wird 16 Stunden bei Raumtemperatur gerührt. Nach Zugabe von 6,8 g Eisessig und 43,4 g 15 1,3-Dimethylbarbitursäure wird die Reaktionsmischung 24 Stunden bei Raumtemperatur und anschließend 6 Stunden zum Sieden erhitzt.

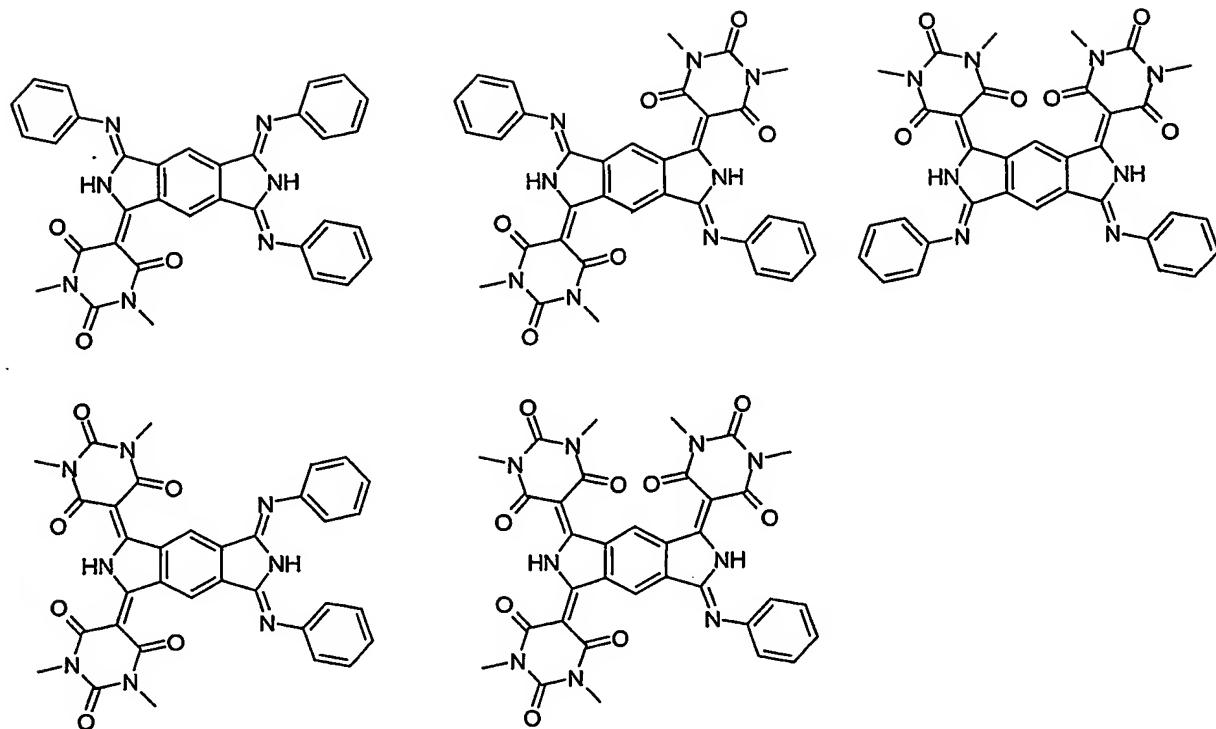
Die Suspension wird auf Raumtemperatur abgekühlt und filtriert. Das Rohprodukt wird zur Reinigung 15 min in 250 mL Eisessig bei Siedetemperatur gerührt, heiß abgesaugt, nacheinander mit Eisessig und heißem Wasser (ca. 90°C) gewaschen 20 und anschließend bei 60°C getrocknet. Die Ausbeute beträgt 43,2 g (89 % d.Th.) eines orangefarbenen Pulvers der vorstehenden Formel.

Schmelzpunkt: > 300°C

MALDI (m/e): 768 [M-H]<sup>-</sup>

25 Beispiel 2: Umsetzung von Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraimin mit Anilin und 1,3-Dimethylbarbitursäure

5,3 g Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraimin und 7,0 g Anilin werden in 150 ml Eisessig 24 Stunden bei Raumtemperatur gerührt, nach Zugabe von 7,8 g 30 1,3-Dimethylbarbitursäure wird die Mischung 6 Stunden zum Sieden erhitzt. Die Suspension wird auf Raumtemperatur abgekühlt, filtriert, nacheinander mit Eisessig, Methanol und heißem Wasser (ca. 90°C) gewaschen und anschließend bei 60°C getrocknet. Die Ausbeute beträgt 9,26 g eines orangefarbenen Pulvers eines Gemisches der folgenden Formeln

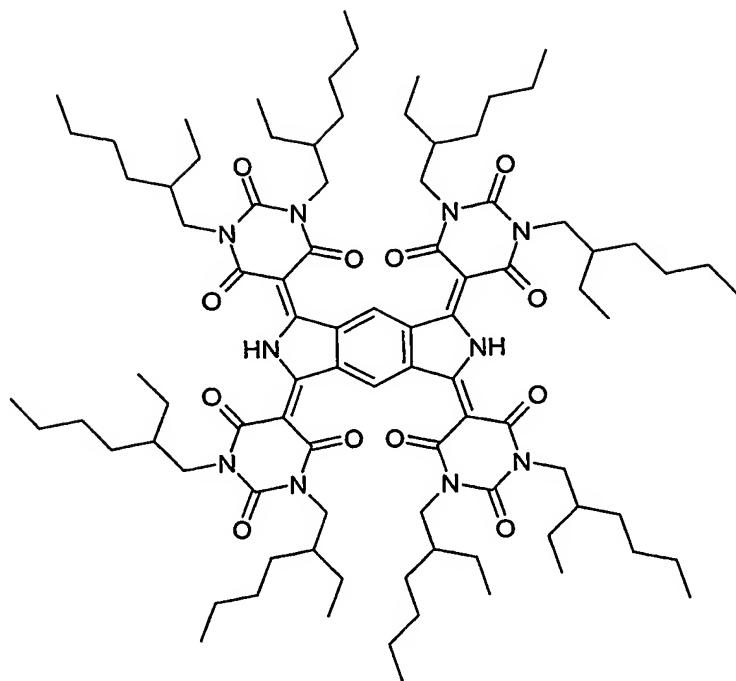


5 Schmelzpunkt: > 300°C

MALDI (m/e): 644, 707, 770 [M+H]<sup>+</sup>

Beispiel 3: 5,5',5'',5'''-Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraylidentetrakis-1,3-bis-(2-ethylhexyl)-2,4,6-trioxo-tetrahydropyrimidin

1,06 g Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraimin und 8,48 g 1,3-Bis-(2-ethylhexyl)-barbitursäure werden in einer Mischung aus 90 mL Methanol und 30 mL Eisessig 24 h bei Raumtemperatur gerührt. Anschließend wird die Suspension filtriert, mit Methanol, dann heißem Wasser (ca. 90°C) gewaschen und bei 60°C getrocknet. Reinigung erfolgt durch Säulenchromatographie über Kieselgel mit einer Laufmittelmischung aus Toluol und Hexan. Die Ausbeute beträgt 1,20 g (15% d.Th.) eines roten Pulvers der folgenden Formel

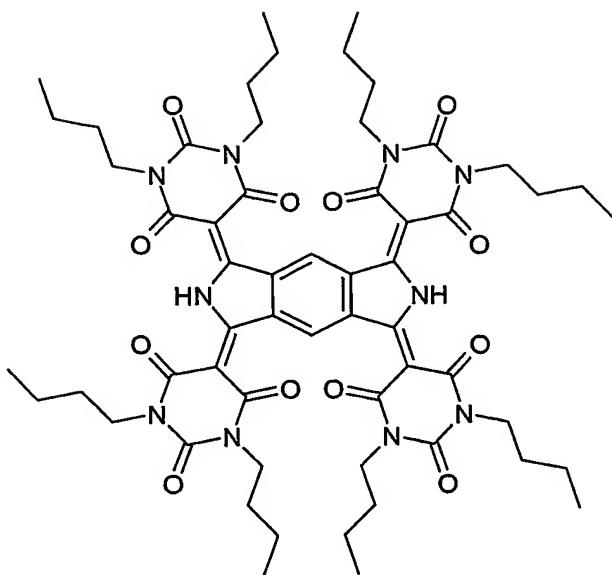


Schmelzpunkt: 113 - 115°C

5 MS (m/e): 1554 [M-H]<sup>-</sup>

Beispiel 4: 5,5',5'',5'''-Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraylidentrakis-1,3-dibutyl-2,4,6-trioxo-tetrahydropyrimidin

10 1,06 g Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraimin und 6,01 g  
 1,3-Dibutylbarbitursäure werden in einer Mischung aus 10 mL Eisessig und 40 mL  
 Toluol 24 h bei Raumtemperatur, dann 6h am Rückfluss gerührt. Nach Abkühlen  
 wird die Suspension filtriert, mit Eisessig, Methanol und heißem Wasser (ca. 90°C)  
 gewaschen und bei 60°C getrocknet. Die Ausbeute beträgt 4,42 g (80% d.Th.) eines  
 15 roten Pulvers der folgenden Formel:



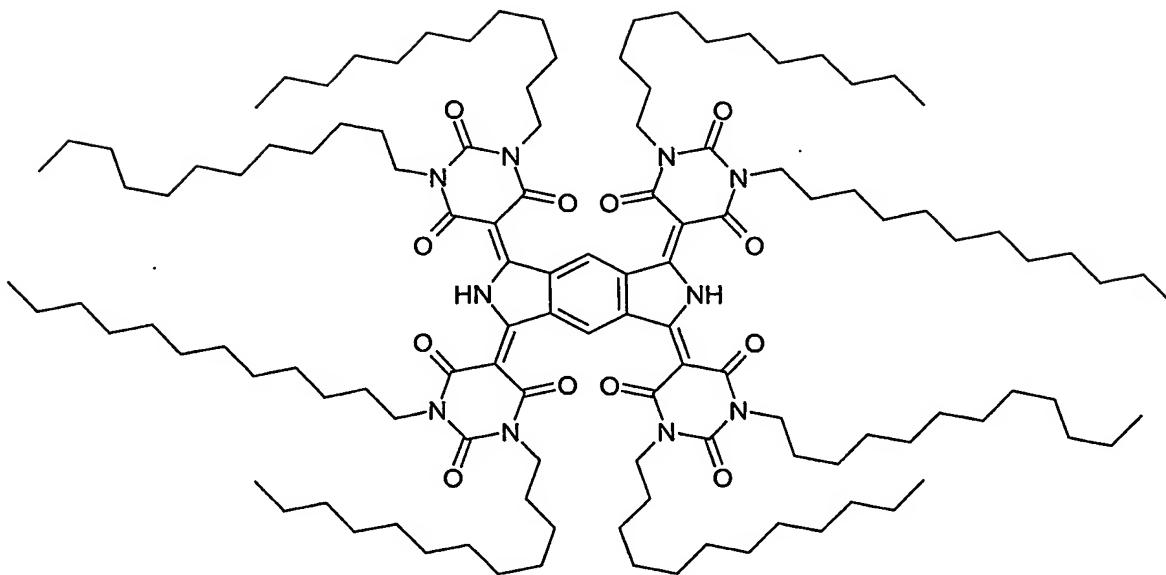
Schmelzpunkt: > 300°C

5 MS (m/e): 1106 [M+H]<sup>+</sup>

Beispiel 5: 5,5',5'',5'''-Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraylidentetrakis-1,3-didodecyl-2,4,6-trioxo-tetrahydropyrimidin

10 1,06 g Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraimin und 11,6 g 1,3-Didodecylbarbitursäure werden in einer Mischung aus 20 mL Eisessig und 80 mL Toluol 24 h bei Raumtemperatur, dann 6 h am Rückfluss gerührt. Nach Abkühlen wird die Suspension filtriert, mit Eisessig, Methanol und heißem Wasser (ca. 90°C) gewaschen und bei 60°C getrocknet. Umkristallisation kann aus

15 Chloroform/Methanol-Gemischen erfolgen. Die Ausbeute beträgt 3,41 g (34 % d.Th.) eines roten Pulvers der folgenden Formel



Schmelzpunkt: 207°C

MS (m/e): 2003 [M-H]<sup>-</sup>

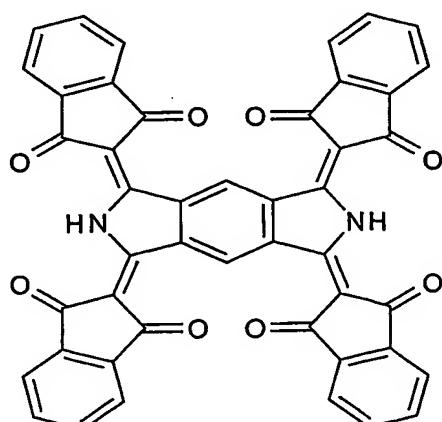
5

Beispiel 6: 2,2',2'',2'''-Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraylidentetrakis  
-1,3-dioxoindan

3,88 g Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraimin und 16,1 g

1,3-Dioxoindan werden in 110 mL Eisessig erst 24 h bei Raumtemperatur gerührt

10 und danach 6 h zum Sieden erhitzt. Die Suspension wird auf Raumtemperatur  
abgekühlt, filtriert, nacheinander mit Eisessig, Methanol und heißem Wasser (ca.  
90°C) gewaschen und anschließend bei 60°C getrocknet. Die Ausbeute beträgt 12,9  
g (97% d.Th.) eines braunroten Pulvers der folgenden Formel



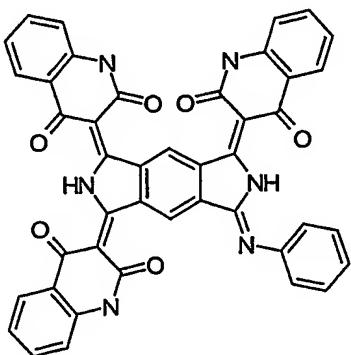
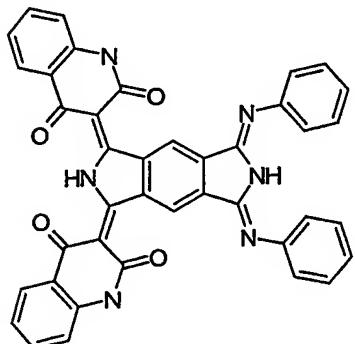
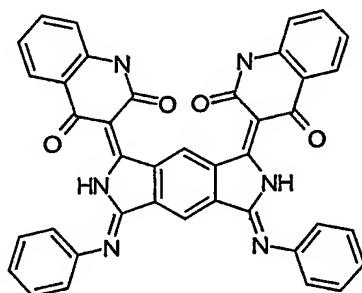
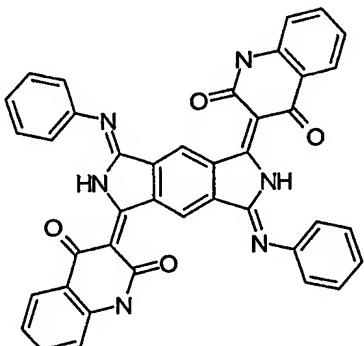
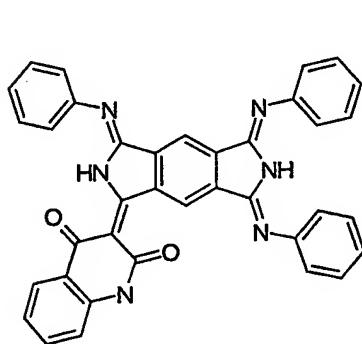
Schmelzpunkt: > 300°C

MS (m/e): 728 [M-H]<sup>-</sup>

Beispiel 7: Umsetzung von Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraimin

5 mit Anilin und 2,4-Dihydroxychinolin

5,3 g Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraimin und 8,1 g  
 2,4-Dihydroxychinolin werden in 150 ml Eisessig erst 24 Stunden bei  
 Raumtemperatur gerührt. Nach Zugabe von 7,0 g Anilin wird 6 Stunden zum Sieden  
 10 erhitzt. Die Suspension wird auf Raumtemperatur abgekühlt, filtriert, nacheinander  
 mit Eisessig, Methanol und heißem Wasser (ca. 90°C) gewaschen und anschließend  
 bei 60°C getrocknet. Die Ausbeute beträgt 11,0 g eines braunroten Pulvers eines  
 Gemischs der folgenden Formeln



15

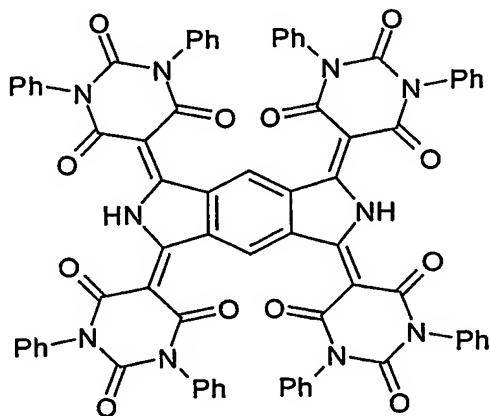
Schmelzpunkt: > 300°C

MALDI (m/e): 586, 654, 722 [M+H]<sup>+</sup>

Beispiel 8: 5,5',5'',5'''-Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetracylidentetrakis-1,3-diphenyl-2,4,6-trioxo-tetrahydropyrimidin

1,06 g Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetraimin und 8,41 g  
 5 1,3-Diphenylbarbitursäure werden in einer Mischung aus 10 mL Eisessig und 40 mL Toluol 1 h bei 50°C, dann 6 h am Rückfluss gerührt. Nach Abkühlen wird die Suspension filtriert, mit Eisessig, Methanol und heißem Wasser (ca. 90°C) gewaschen und bei 60°C getrocknet. Die Ausbeute beträgt 5,21 g (82% d.Th.) eines roten Pulvers der folgenden Formel

10



Schmelzpunkt: > 300°C

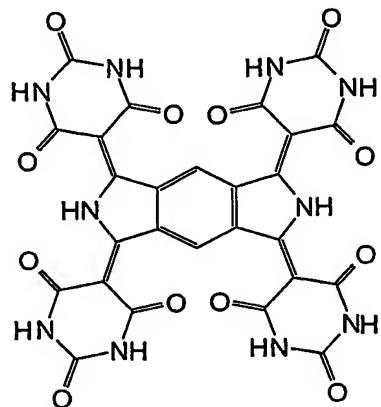
MS (m/e): 1266 [M+H]<sup>+</sup>, 1288 [M+Na]<sup>+</sup>

15

Beispiel 9: 5,5',5'',5'''-Benzo[1,2-c:4,5-c']dipyrrol-1,3,5,7(2H,6H)-tetracylidentetrakis-2,4,6-trioxo-tetrahydropyrimidin

Eine Suspension von 11,3 g 1,2,4,5-Tetracyanobenzol und 3,0 g  
 20 Natriummethylatlösung (30 % in Methanol) in 340 mL Methanol wird 16 h bei RT gerührt. Nach Zugabe von 6,8 g Eisessig und 34,0 g Barbitursäure wird die Reaktionsmischung 24 h bei Raumtemperatur und anschließend 6 h zum Sieden erhitzt. Die Suspension wird auf Raumtemperatur abgekühlt und filtriert. Das Rohprodukt wird zur Reinigung 15 min in 250 mL Eisessig bei Siedetemperatur  
 25 gerührt, heiß abgesaugt, nacheinander mit Eisessig und heißem Wasser (ca. 90°C)

gewaschen und anschließend bei 60°C getrocknet. Die Ausbeute beträgt 38,2 g (92 % d.Th.) eines braunen Pulvers der folgenden Formel



Schmelzpunkt: > 300°C

MALDI (m/e): 656 [M-H]<sup>-</sup>

#### Anwendungsbeispiele

10 Zur Beurteilung der Eigenschaften der nach der Erfindung hergestellten Pigmente auf dem Lacksektor wurden aus der Vielzahl der bekannten Lacke ein aromatenhaltiger Alkydmelaminharzlack (AM) auf Basis eines mittelölichen Alkydharzes und eines butanolveretherten Melaminharzes, sowie ein aromatenfreier 15 lufttrocknender Alkydharzlack (LA) auf Basis eines langölichen Sojaalkydharzes ausgewählt.

Zur Beurteilung der Eigenschaften der erfindungsgemäß polymerlöslichen Farbstoffe wurde glasklares Polystyrol als einzufärbender Kunststoff ausgewählt. Die 20 Herstellung von Prüfkörpern erfolgte durch Spritzgießen.

#### Anwendungsbeispiel 1:

Eine Applikation des Pigments aus Beispiel 1a in AM-Lack zeigt im Vollton eine reine, blaustrichig rote, in der Aufhellung eine farbstarke, rotstichig orangefarbene

25 Lackierung.

**Anwendungsbeispiel 2:**

Eine Applikation des Pigments aus Beispiel 1b in AM-Lack zeigt im Vollton eine reine, blaustichig rote, in der Aufhellung eine farbstarke, rotstichig orangefarbene Lackierung.

5

**Anwendungsbeispiel 3:**

Eine Applikation des Pigments aus Beispiel 2 in AM-Lack zeigt im Vollton und in der Aufhellung farbstarke, gelbstichig orangefarbene Lackierungen.

**10 Anwendungsbeispiel 4:**

Eine Applikation des Pigments aus Beispiel 3 in LA-Lack ergibt im Vollton und in der Aufhellung gelbstichig orangefarbene Lackierungen.

**Anwendungsbeispiel 5:****15 Eine Applikation des Pigments aus Beispiel 3 in Polystyrol ergibt im Vollton und in der Aufhellung farbstarke rotstichig orangefarbene Prüfkörper.****Anwendungsbeispiel 6:****20 Eine Applikation des Pigments aus Beispiel 4 in AM-Lack zeigt im Vollton eine reine rote, in der Aufhellung eine farbstarke, neutrale rote Lackierung.****Anwendungsbeispiel 7:**

Eine Applikation des Pigments aus Beispiel 4 in Polystyrol ergibt im Vollton und in der Aufhellung reine und farbstarke rotstichig orangefarbene Prüfkörper.

25

**Anwendungsbeispiel 8:**

Eine Applikation des Pigments aus Beispiel 5 in Polystyrol ergibt im Vollton und in der Aufhellung reine und farbstarke rotstichig orangefarbene Prüfkörper.

**30 Anwendungsbeispiel 9:**

Eine Applikation des Pigments aus Beispiel 6 in AM-Lack zeigt im Vollton eine deckende, gelbstichig rote, in der Aufhellung farbstarke, rotstichig braune Lackierung.

Anwendungsbeispiel 10:

Eine Applikation des Pigments aus Beispiel 7 in AM-Lack zeigt im Vollton eine transparente braune, in der Aufhellung gelbstichig braune Lackierung.

5 Anwendungsbeispiel 11:

Eine Applikation des Pigments aus Beispiel 8 in AM-Lack zeigt im Vollton ein deckendes Bordo, in der Aufhellung ein farbstarkes blaustichiges Rot.

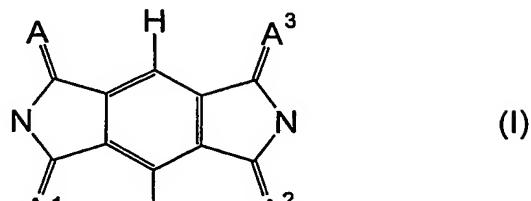
Anwendungsbeispiel 12:

10 Eine Applikation des Pigments aus Beispiel 9 in AM-Lack zeigt im Vollton eine deckend braune, in der Aufhellung neutrale braune Lackierung.



## Patentansprüche

## 1) Verbindung der allgemeinen Formel (I)



5

worin A für den zweiwertigen Rest einer cyclischen Verbindung der allgemeinen Formel (II)



10

wobei B eine alicyclische oder heterocyclische Gruppe bedeutet, und A¹, A² und A³ gleich oder verschieden sind und die Bedeutung von A haben oder =NR bedeuten, wobei R Wasserstoff, unsubstituiertes oder durch 1, 2, 3 oder 4 Reste Halogen, R⁰, OR⁰, SR⁰, NH₂, NHR⁰, NR⁰₂, NO₂, COOH, COOR⁰, CONH₂, 15 CONHR⁰, CONR⁰₂, CN, SO₃H, SO₂(OR⁰), SO₂R⁰, oder durch einen 5- bis 7-gliedrigen heteroaromatischen Rest mit 1, 2 oder 3 Heteroatomen aus der Gruppe N, O und S substituiertes Phenyl; einen 5- bis 7-gliedrigen heteroaromatischen Rest mit 1, 2 oder 3 Heteroatomen aus der Gruppe N, O und S; NH₂, NHR⁰, NR⁰₂, NHCONH₂ oder NHCONHR⁰ bedeutet, wobei R⁰ für C₁-C₁₈-Alkyl oder C₆-C₂₄-Aryl steht.

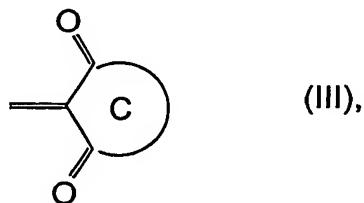
20

2) Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass einer der Reste A¹, A² und A³ die Bedeutung von A hat.

25 3) Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass zwei der Reste A¹, A² und A³ die Bedeutung von A haben.

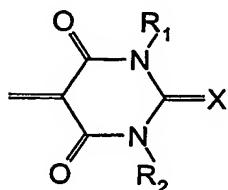
4) Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup> und A<sup>3</sup> die Bedeutung von A haben.

5) Verbindung nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass A für den zweiwertigen Rest einer cyclischen Verbindung der allgemeinen Formel (III) steht

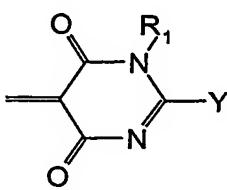


wobei C eine alicyclische oder heterocyclische Gruppe bedeutet.

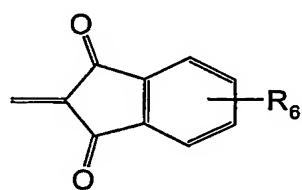
6) Verbindung nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass A einen zweiwertigen Rest der Formeln (a) bis (g) bedeutet,



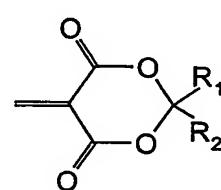
(a)



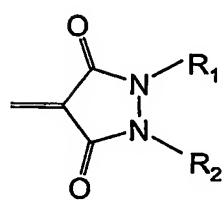
(b)



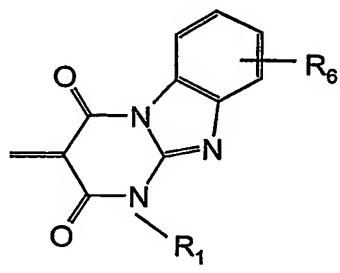
(c)



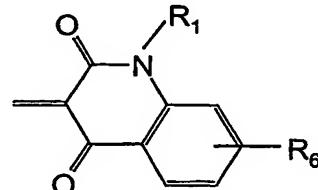
(d)



(e)



(f)



(g)

wobei R<sub>1</sub> und R<sub>2</sub> unabhängig voneinander für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>25</sub>-Alkyl, C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6</sub>-C<sub>24</sub>-Aryl, C<sub>1</sub>-C<sub>25</sub>-Alkyl-(C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-aryl), einen 5- bis 7-gliedrigen heteroaromatischen Rest mit 1, 2 oder 3 Heteroatomen aus der Gruppe N, O und S,

- $(CH_2)_n-COR_3$  oder  $-(CH_2)_m-OR_4$ , stehen,  
 worin  $R_3$  für Hydroxy, Amino oder für unsubstituiertes oder ein- oder mehrfach mit  
 Hydroxy oder Amino substituiertes  $C_1-C_{25}$ -Alkoxy,  $C_1-C_{25}$ -Alkylamino, Di- $(C_1-C_{25}$ -  
 alkyl)-amino,  $C_6-C_{24}$ -Arylamino, Di- $(C_6-C_{24}$ -Aryl)-amino,  $C_1-C_{25}$ -Alkyl- $(C_6-C_{10}$ -aryl)-  
 5 amino oder  $C_2-C_{24}$ -Alkenyloxy steht;  
 $R_4$  für Wasserstoff oder  $-CO-(C_1-C_{25}$ -Alkyl) steht, und  
 n und m unabhängig voneinander für eine ganze Zahl im Bereich von 0 bis 6 stehen,  
 und worin in  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$  und  $R_4$  eine C-C- Einheit auch durch eine Ethereinheit C-O-C  
 ersetzt sein kann;

10 X für =O, =S oder =NR<sub>5</sub> steht, worin R<sub>5</sub> die gleiche Bedeutung wie R<sub>1</sub> oder R<sub>2</sub> hat;  
 Y für Wasserstoff, R<sub>2</sub>, OR<sub>2</sub>, SR<sub>2</sub>, NHCN oder NR<sub>2</sub>R<sub>5</sub> steht;  
 und R<sub>6</sub> Wasserstoff, Halogen, CN, R<sub>2</sub>, OR<sub>2</sub>, SR<sub>2</sub>, NR<sub>2</sub>R<sub>5</sub>, NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>(OR<sub>2</sub>), SO<sub>2</sub>R<sub>2</sub>,  
 SO<sub>2</sub>NR<sub>2</sub>R<sub>5</sub> oder PO<sub>2</sub>(OR<sub>2</sub>) bedeutet.

15 7) Verbindung nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, dass  
 R<sub>1</sub> und R<sub>2</sub> Wasserstoff,  $C_1-C_{18}$ -Alkyl,  $C_5-C_6$ -Cycloalkyl,  $C_6-C_{10}$ -Aryl, Benzyl, Pyridyl,  
 Pyrryl, Thienyl, Imidazolyl, Oxazolyl, Thiazolyl, Pyrimidyl, Hydroxycarbonyl- $C_0-C_6$ -  
 alkyl,  $C_1-C_{18}$ -Alkoxycarbonyl- $C_0-C_6$ -alkyl, Aminocarbonyl- $C_0-C_6$ -alkyl,  $C_1-C_{18}$ -  
 Alkylaminocarbonyl- $C_0-C_6$ -alkyl,  $C_6-C_{10}$ -Arylaminocarbonyl- $C_0-C_6$ -alkyl, Di( $C_1-C_{18}$ -  
 20 alkyl)-aminocarbonyl- $C_0-C_6$ -alkyl,  $C_1-C_{18}$ -Alkyl- $C_6-C_{10}$ -arylaminocarbonyl- $C_0-C_6$ -alkyl  
 oder Di( $C_6-C_{10}$ -aryl)-aminocarbonyl- $C_0-C_6$ -alkyl bedeuten.

25 8) Verbindung nach Anspruch 6 oder 7, dadurch gekennzeichnet, dass  
 R<sub>3</sub> Hydroxy,  $C_1-C_{18}$ -Alkoxy,  $C_1-C_{18}$ -Alkylamino, Di( $C_1-C_{18}$ -alkyl)-amino,  
 Benzylamino,  $C_6-C_{10}$ -Arylamino, Di( $C_6-C_{10}$ -aryl)-amino oder ( $C_2-C_{18}$ )-Alkenyloxy  
 bedeutet.

9) Verbindung nach einem oder mehreren der Ansprüche 6 bis 8, dadurch  
 gekennzeichnet, dass

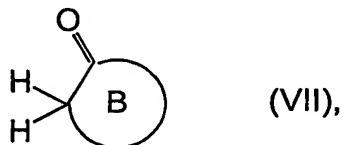
30 R<sub>6</sub> Wasserstoff, Cl, Br,  $C_1-C_{18}$ -Alkyl,  $C_5-C_6$ -Cycloalkyl, Benzyl,  $C_6-C_{10}$ -Aryl, Pyridyl,  
 Pyrryl, Thienyl, Imidazolyl, Oxazolyl, Thiazolyl, Pyrimidyl,  $C_1-C_{18}$ -Alkoxy,  $C_6-C_{10}$ -  
 Aryloxy,  $C_1-C_{18}$ -Alkylthio,  $C_6-C_{10}$ -Arylthio,  $C_1-C_{18}$ -Alkylamino,  $C_6-C_{10}$ -Arylamino,  
 Di( $C_1-C_{18}$ -alkyl)-amino,  $C_1-C_{18}$ -Alkyl- $C_6-C_{10}$ -arylamino, Di( $C_6-C_{10}$ -aryl)-amino, SO<sub>3</sub>H,

$C_1$ - $C_{18}$ -Alkoxyfonyl,  $C_1$ - $C_{18}$ -Alkylsfonyl oder Di( $C_1$ - $C_{18}$ -alkyl)-aminosfonyl bedeutet.

10) Verfahren zur Herstellung einer Verbindung nach mindestens einem der 5 Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass 1,2,4,5-Tetracyanobenzol mit mindestens 2 Äquivalenten Ammoniak und/oder Alkoholaten  $MOR_7$ , worin M Natrium oder Kalium bedeutet und  $R_7$  für  $C_1$ - $C_{18}$ -Alkyl oder  $-(CH_2)_m-OH$  steht und m eine ganze Zahl im Bereich von 0 bis 6 bedeutet, und eine C-C-Einheit auch durch eine Ethereinheit C-O-C ersetzt sein kann,

10 in einem Lösemittel oder Lösemittelgemisch unter basischen bis neutralen Bedingungen bei einer Temperatur von -20 bis 120°C zu tetra-, tri-, di- oder monoiminosubstituierten Benzodipyrrolen umgesetzt wird,

15 die in einem Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch unter neutralen bis sauren Bedingungen mit mindestens 1 Äquivalent einer cyclischen Verbindung der Formel (VII),



und gegebenenfalls höchstens 3 Äquivalente  $H_2NR$  umgesetzt werden.

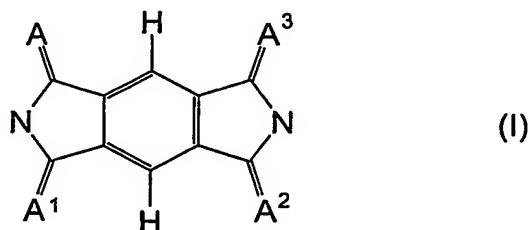
20 11) Verwendung einer Verbindung nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 9 zum Einfärben oder Pigmentieren von organischen oder anorganischen, hoch- oder niedermolekularen Materialien.

25 12) Zusammensetzung, enthaltend ein organisches oder anorganisches, hochmolekulares oder niedermolekulares Material, und mindestens eine der in einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9 definierten Verbindungen in einer Menge von 0,005 bis 70 Gew.-%, bezogen auf das organische oder anorganische Material.

## Zusammenfassung

### Heterocyclische Farbmittel auf Basis von Benzodipyrrolen

5 Die Erfindung betrifft eine Verbindung der allgemeinen Formel (I)



worin A für den zweiwertigen Rest einer cyclischen Verbindung der allgemeinen  
10 Formel (II)



wobei B eine alicyclische oder heterocyclische Gruppe bedeutet, und  
A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup> und A<sup>3</sup> gleich oder verschieden sind und die Bedeutung von A haben oder  
15 =NR bedeuten, wobei R Wasserstoff, unsubstituiertes oder durch 1, 2, 3 oder 4  
Reste Halogen, R<sup>0</sup>, OR<sup>0</sup>, SR<sup>0</sup>, NH<sub>2</sub>, NHR<sup>0</sup>, NR<sup>0</sup><sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, COOH, COOR<sup>0</sup>, CONH<sub>2</sub>,  
CONHR<sup>0</sup>, CONR<sup>0</sup><sub>2</sub>, CN, SO<sub>3</sub>H, SO<sub>2</sub>(OR<sup>0</sup>), SO<sub>2</sub>R<sup>0</sup>, oder durch einen 5- bis 7-  
gliedrigen heteroaromatischen Rest mit 1, 2 oder 3 Heteroatomen aus der Gruppe N,  
O und S substituiertes Phenyl; einen 5- bis 7-gliedrigen heteroaromatischen Rest mit  
20 1, 2 oder 3 Heteroatomen aus der Gruppe N, O und S; NH<sub>2</sub>, NHR<sup>0</sup>, NR<sup>0</sup><sub>2</sub>, NHCONH<sub>2</sub>  
oder NHCONHR<sup>0</sup> bedeutet, wobei R<sup>0</sup> für C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl oder C<sub>6</sub>-C<sub>24</sub>-Aryl steht.